This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problems Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)



0 263 524

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

- (21) Anmeldenummer: 87114743.5
- ② Anmeldetag: 09.10.87

(51) Int. Cl.4: C08K 5/00,

//(C08K5/00,5:15,5:52,5:53)

- © Priorität: 10.10.86 DE 3634531
- Veröffentlichungstag der Anmeldung: 13.04.88 Patentblatt 88/15
- Benannte Vertragsstaaten:
 AT BE CH DE ES FR GB IT LI NL SE
- Anmelder: BASF Aktiengesellschaft Carl-Bosch-Strasse 38
 D-6700 Ludwigshafen(DE)
- 22 Erfinder: Bock, Gustav, Dr.
 Waldstrasse 16
 D-6730 Neustadt(DE)
 Erfinder: Trauth, Hubert
 Milanstrasse 5
 D-6724 Dudenhofen(DE)
 Erfinder: Weber, Wilhelm, Dr.
 Mandelbergstrasse 40
 D-6730 Neustadt(DE)
 Erfinder: Lechtken, Peter, Dr.
 Ludwigshafener Strasse 6 b

D-6710 Frankenthal(DE)

- Stabilisatorgemische für Kunststoffe.
- Die Erfindung betrifft Stabilisatorgemische zur Sgabilisierung von Kunststoffen bestehend aus einem Gewichtsteil Chromanderivat (I) der allgemeinen Formel

I,

wobei R =
$$-(CH_2)_3-CH-(CH_2)_3-CH-(CH_2)_3-CH-CH_3$$

 CH_3 CH_3 CH_3

oder
$$-CH_2-CH_2-O-C-Z$$
, worin $Z = C_7$ - bis C_{30} -Alkyl,

$$-CH_2CH_2-S-[C_1-bis C_30-Alkyl]$$
 oder

und

Xerox Copy Centre

5 bis 14 Gewichtsteilen eines organischen Phosphits der allgemeinen Formel (II)

mit R^1 , R^2 , R^3 = gleiche oder verschiedene Alkyl-und/oder Arylgruppen oder eines organischen Phosphonits der Formel (III)

worin $+ = C(CH_3)_3$,

wobei ein Mischungsverhältnis (a): (b) = 1:6 bis 1:10 bevorzugt ist.

Stabilisatorgemische für Kunststoffe

Die Erfindung betrifft Stabilisatorgemische zur Stabilisierung von Kunststoffen bei deren Verarbeitung. Derartige Stabilsatorgemische werden den Kunststoffen während oder vor der Verarbeitung zugesetzt, um die Kunststoffe vor Zersetzung zu schützen, wobei sich bekanntlich die Wirkungen verschiedener Stabilisatorsysteme addieren können.

Aus den deutschen Patenten 1 114 319 und 1 136 102 ist es bekannt, α-Tocopherol als Stabilisierungsmittel für Kunststoffe zu verwenden.

α-Tocopherol gibt jedoch zu Verfärbungen Anlaß, so daß es vor allem zur Stabilisierung von farblosen Kunststoffen praktisch nicht geeignet ist. Außerdem entspricht die Stabilisierung nicht der mit phenolischen Stabilisatoren erzielten. Aus diesem Grunde vermochte das α-Tocopherol die bisherigen handelsüblichen phenolischen Stabilisatoren nicht zu ersetzen, obwohl man dem physiologisch unbedenklichen Naturstoff α-Tocopherol an sich den Vorzug geben würde und obwohl auch die phenolischen Stabilisatoren nicht in jeder Beziehung befriedigen.

Aus der japanischen Offenlegungsschrift 53/141 354 ist bekannt, daß Mischungen aus α -Tocopherol und einem Saccharid oder einem mehrwertigen Alkohol gegen Verfärbungen stabiler als die Tocopherole allein sind, jedoch sind die Stabilisierungseffekte nicht ausreichend.

In den deutschen Offenlegungsschriften 30 10 505, 31 03 707 und 31 03 740, sowie in der EP-A1-0191463 werden Chromanderivate der Formel:

in der Z für ein C-bis C3-Alkyl, -CH2-CH2-S[C1-bis C3-Alkyl] oder für

stehen, und deren Verwendung zur Stabilisierung von organischen Materialien beschrieben bzw. vorgeschlagen.

Der Einsatz von Triestern der phophorigen Säure als Stabilisatoren in Kunststoffen ist seit langem bekannt. Ebenfalls ist z. B. in J. Voigt "Die Stabilisierung der Kunststoffe gegen Licht und Wärme", 1. Aufl., Springer Verlag, 1966, Seite 323, die Kombination von Phosphorigsäureestern mit anderen Antioxidantien als deren bevorzugte Anwendungsform beschrieben.

In dem japanischen Patent 43 15 685 wird Tris-(2,4-di-tert.-butyl-5-methylphenyl)phosphit in Kombination mit verschiedenen Antioxidantien vorgeschlagen. Solche Mischungen führen bei thermischer Belastung, wie sie bei der Verarbeitung von polyolefinischen Substraten auftritt, zu vergilbten Polymeren.

5

10

15

25

30

35

40

10

Die japanische Offenlegungsschrift 55 043/79 beschreibt Polyolefinmischungen, in denen zu den Polyolefinen Vitamine aus der Gruppe der Vitamine E und Phosphite zur Stabilisierung zugemischt werden. In den Beispielen 1 - 6 werden Vitamin E und verschiedene Phosphite im Verhältnis 1 : 1.6 bis 1 : 3,3, in den Beispielen 7 - 12 zusätzlich noch 0,01 Gew.-teile 2,6-Di-tert.butyl-p-kresol zur Verbesserung der Verfärbungsstabilität eigesetzt. Die Ergebnisse dieser Beispiele zeigen, daß diese Mischungen bei der Vergilbung nicht zufrieden stellen können. Darüberhinaus ist durch den hohen Anteil des teuren Vitamins E ein wirtschaftliches Stabilisatorsystem nicht gegeben.

Aufgabe der volliegenden Erfindung war es daher, im Hinblich auf die Verarbeitungsstabilität und die Verfärbung der Produkte verbesserte Stabilisatorsysteme zu finden.

Diese Aufgabe wurde durch Stabilisatorgemische gemäß Ansprüchen 1 bis 2 gelöst.

Die erfindungsgemäßen Stabilisatorsysteme bestehen aus:

a) einem Chromanderivat (I) der allgemeinen Formel

20 Wobei
$$R = -(CH_2)_3 - CH - (CH_2)_3 - CH$$

und

40

45

50

b) einem organischen Phosphit der allgemeinen Formel (II)

mit R¹, R², R³ = gleiche oder verschiedene Alkyl-und/oder Arylgruppen oder einem organischen Phosphonit der Formel (III)

worin $+ = C(CH_3)_3$,

im Verhältnis (a): (b) = 1:5 bis 1:14 Gewichtsteilen, bevorzugt im Verhältnis 1:6 bis 1:10 Gewichtsteilen. Die Alkyl-und/oder Arylgruppen R¹, R² und R³ sind bevorzugt C₂-bis C₁₂-Alkyl-oder gegebenenfalls mit C₄-bis C₁₈-Alkylgruppen substituierte Phenylreste.

Die erfindungsgemäßen Mischungen in den beanspruchten Gewichtsverhältnissen weisen im Vergleich zu den in den Beispielen der japanischen Offenlegungsschrift 55 043/79 beschriebenen Stabilisatorgemischen, wie auch im Vergleich zu anderen bekannten Stabilisatoren-meist phenolische Verbindungen, Phosphite oder Gemische daraus - in Kunststoffen eine deutlich verbesserte Stabilisierung gegen Verfärbung und eine überlegene Verarbeitungsstabilität auf. Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Stabilisatorsystems liegt in der Wirtschaftlichkeit dieser Mischungen durch die Verringerung des Anteils an teurem Vitamin E.

Die erfindungsgemäß einsetzbaren Phosphite sind sowohl flüssige, wie auch kristalline Produkte. Als Beispiele für Phosphite sind zu nennen:

Trisalkylphosphite mit bevorzugt langkettigen oder verzweigten Alkylgruppen wie Octyl-, Nonyl-, Isononyl-, Decyl-oder Isodecylgruppen.

Triarylphosphite mit unsubstituierten oder ein-oder mehrfach alkylsubstituierten Arylgruppen, wie Phenyl-, Nonylphenyl-oder 2,4-Di-tert.-butylphenylgruppen.

Gemischte Arylalkylphosphite, wie Diisodecylphenylphosphit oder Diphenylpentaerythritdiphosphit.

Die Phosphite der Formel II werden nach bekannten Methoden synthetisiert, beispielsweise durch Umsetzung von PCl₂ mit ein-oder mehrwertigen Alkoholen in Gegenwart einer organischen Base oder mit gegebenenfalls substituierten Phenolen ohne Lösungsmittel bei 20 bis 250°C. Die gemischten Alkylarylphosphite werden beispielsweise durch Umsetzung von Triphenylphosphit mit ein-oder mehrwertigen Alkoholen in Gegenwart eines basischen Katalysators, vorzugsweise ohne Lösungsmittel hergestellt. Das Phosphonit (III) ist bekannt und im Handel unter dem Handelsnamen "Irgafos P-EPQ" der Firma Cib-Geigy erhältlich, so daß sich eine weitere Beschreibung erübrigt.

Die erfindungsgemäße Stabilisatormischung wird in einer Konzentration von 0,005 bis 5, bevorzugt 0,05 bis 1 Gew.-%, berechnet auf das zu stabilisierende Material, eingearbeitet.

Neben dem erfindungsgemäßen Stabilisatorsystem aus Komponente a) und b) können auch weitere Stabilisatorzusätze, wie z. B. die für Stabilisierungszwecke bekannten Synergisten Calciumstearat und Distearylthiodipropionat (S-(CH₂CH₂-COOC₁₈H₃₇)₂) in üblichen Mengen in die Kunststoffe eingemischt werden.

Mit den Stabilisatoren können auch zusammen mit Kunststoffen Konzentrate hergestellt werden und diese dann zusammen mit den zu stabilisierenden Kunststoffen verarbeitet werden.

Bei der Verarbeitung bringen je nach Anwedungsgebiet Konzentrate Vorteile, da diese bei der Verarbeitung leichter zu handhaben und zu dosieren sind.

Als Kunststoffe kommen insbesondere Termoplaste, wie Polyvinylchlorid, Styrolpolymerisate, Polyamide, Polycarbonat, Polyphenylenoxid, Polyester, Polyolefine vorzugsweise Polyethylen und Polypropylen, Polyurethane und Duroplaste in Betracht.

Für die Eignung und Wirksamkeit von Stabilisatoren sind vor allem folgende Kriterien maßgebend;

1. Farbe

15

20

30

35

40

45

50

Der Thermoplast, Duroplast, Polyurethan soll durch den Stabilisator nicht verfärbt werden. Diese Forderung ist für farblose Thermoplaste, Duroplaste und Polyurethane besonders wichtig.

Verarbeitungsstabilität

Hierunter ist die Eigenschaftskonstanz von Thermoplasten gegenüber der mechanischen und thermischen Beanspruchung bei Formgebungsverfahren wie der Extrusion und dem Spritzguß verstehen.

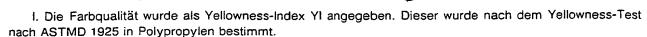
Eine Maßzahl für die Verarbeitungsstabilität läßt sich aus der Änderung des Schmelzverhaltens der betreffenden Thermoplaste nach mehrmaliger Formgebung unter Aufschmelzen ableiten.

Der entsprechende Schmelzindex-Test ist in ASTM D 1238-65T beschrieben. Ein wichtiges Kriterium für die Verarbeitungsstabilität ist auch die Veränderung der Farbe nach mehrmaliger Formgebung unter Aufschmelzen. Diese Veränderung sollte möglichst gering sein: Yellowness-Test (ASTMD 1925).

In Bezug auf Farbstabilität und Verarbeitungsstabilität zeigen die Mischungen im erfindungsgemäßen Gewichtsverhältnis besondere Vorteile gegenüber den in der japanischen Offenlegungsschrift 55 043/79 beschriebenen Mischungen und auch den phenolischen Antioxidantien des Standes der Technik.

Die Erfindung soll durch die folgenden Beispiele zusätzlich erläutert werden.

Die Stabilisator enthaltenden Polymere wurden hinsichtlich Farbqualität und Verarbeitungsstabilität beurteilt.



Die angegebenen YI-Werte sind jeweils das Mittel aus zwei Messungen. Je höher diese Werte, um so geringer ist die Farbqualität, d. h. um so stärker die Verfärbung.

Bei der Farbqualität entsprechen die genannten Werte den nachfolgend angegebenen visuellen Eindrücken

bis 2 nicht erkennbare Verfärbung

- 3 5 sehr schwache Verfärbung
- 5 10 schwache, aber bereits deutlich erkennbare Verfärbung
- 10 20 merkliche Verfärbung
- > 20 starke Verfärbung

Der Stabilisator wurde in allen Fällen in gleicher Weise eingearbeitet und das Material zu Granulat verarbeitet, aus dem Platten von 1 mm Schichtdicke geformt wurden. Am letzteren wurde der Yellowness-Index bestimmt.

II. Die Verarbeitungsstabilität wurde an gleichem Polypropylen (wie bei (I)) bestimmt. Hierzu wurde das Gemisch extrudiert und granuliert. An dieser einmal extrudierten Probe wurde der Schmelzindex nach DIN 53 735 gestimmt: MFI₁. Diese Probe wurde dann noch 7 mal extrudiert und granuliert und an diesem Produkt dann der Schmelzindex wie oben bestimmt: MFI₈.

Aus den Schmelzindices wurde der Quotient

20

30

35

15

5

MFI₈ MFI₁

25 gebildet.

Je größer der Quotient ist, um so geringer ist die Verarbeitungsstabilität.

Weiterhin wurde an den Proben nach einmaligem und achtmaligem Extrudieren und Granulieren der Yellowness-Index YI₁ und YI₂ nach (I) bestimmt.

Als Polypropylen (PP) wurde in allen Fällen additivfreies dechloriertes Polypropylen verwendet.

Folgende Stabilisatorkomponenten wurden in den Beispielen 1 - 24 verwendet:

Stabilisator a:

- $(a^1) = DL-\alpha-Tocopherol$
- $(a^2) = 2.5.7.8$ -Tetramethyl-2-(2' stearyloxyethyl)-chroman

Stabilisator b:

(b1) = Trisnonylphenylphosphit

P-(-0-(-)^{CgH1g})₃

40

(b²) = Tetraphenyldipropylenglykoldiphosphit

45

(b3) = TRIS-(2,4-di-tert.-butylphenyl)phosphit

50

55

(b4) = Tetrakis(2,4-di-tert.-butylphenyl)-4,4'-bisphenylendiphosphit

	50	45	40	35	30	25	20	15	10	5	
abelle:	Erfindu	abelle: Erfindungsgemäf	ße Beispiele	Φ							
eispiel	Stabilisator (a)	isator	Stabilisator (b)	a o	Konz.: Gew. 1 bez. auf PP	Verhältnis (a): (b) GewTeile		Schmelzindex MFI MFI ₁ MFI ₈ g/10min g/10min		Yellowness-Index YI ₁ YI _β	
	(a1)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	. 5	4.2	8,4	1,0	6,5	
	(a1)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	1:6	4,2	8,4	9,0	3,4	
	(a1)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	1:8	4.1	1.4	7.0	3,5	
	(a1)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	1: 10	4,2	6,4	7.0	3,6	
	(a1)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	1: 12	4,5	9'9	9'0	3,5	
	(a ¹)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	0,1	1: 14	6'4	0'8	7.0	3,6	
	(a ²)	Trisno	Trisnonylphenylphosphit	osphit	٥, ٦	1:6	6,4	5,8	9'0	3,2	
	(a1)	Tetrapi	Tetraphenyldipropylen-	ylen-	0,1	1 : 6	4,3	5, 5	7,0	3,6	
		glykol	glykoldiphosphit			-					
	(a ²)	:	1		0,1	1 : 6	4.4	0'9	7'0	3,5	
0	(a1)	Tris-(Tris-(2,4-di-tertbutyl	butyl-	0,1	1 : 6	4.4	6,2	9,0	3,2	
		pheny1))phosphit								
-	(a ²)				0,1	9 : 0	4,5	7'9	9.0	3,1	
2	(a1)	Tetrak	Tetrakis(2,4-di-tert	ert	0,1	1:6	6,4	6'9	9'0	3,1	
		butylp	henyl)-4-4'-biphe-	-biphe-							
		nylend.	nylendiphosphonit								
3	(a2)	:			0,1	1:6	4.4	6,1	9,0	3,0	

5		Yellowness-Index	YI8		30,0	26,0	3,0	3,0		2,9	ć	0'7		26,0	23,0	0'6	3,7	3,7
10		Yellowne	۲۱,		18	14	9'0	9'0		9'0	•	•		14,0	10,0	3,0	7.0	9'0
15		Schmelzindex MFI	MF I 8	9/10mm	3,5	0'6	4,6	10,6		10,8	c	2		5,3	5,2	8.4	11,0	11,5
20		Schmelzi	MFI	9/10min	4,5	5'7	1' 4	8,4		6.4	u	•		6,4	4,3	4.1	5,7	0'9
25		Verhältnis	(a) : (b)	uew Ге1⊥е	ı	1	ı	ı		ī					1:2	1 : 4	1 : 15	1:16
30		Konz.:	Gew. 7	Dez. auf PP	0,1	0.1	0,1	0,1		0.1	-			0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
35		isator	(q)				Trisnonylphenylphosphit	Tetraphenyldipropylen-	phit	2,4-ditertbutyl-	phenyll-phosphilc Totrobiolo (-ditort _butu))-4,4'-biphenyl-di-		Trisnonylphenylphosphit	Trisnonylphenylphosphit	Trisnonylphenylphosphit	Trisnonylphenylphosphit	Trisnonylphenylphosphit
40	ispiele	Stabilisator	_		ı	ı	nonylphe	aphenyld	glykoldiphosphit	-(2,4-di	pnenyı)-pnospnıc Totrabiolo (-dit	y1)-4,4'-	phosphonit	nonylpher	nonylpher	nonylpher	nonylpher	nonylpher
45	Tabelle: Vergleichsbeis	Beispiel Stabilisat.	(a)		(a ¹)	(a ²)	- Tris	- Tetr	glyk	- Tris-	Juen.		soyd	(a1) Tris	(a1) Tris	(al) Tris	(al) Tris	(a ¹) Tris
50	Tabelle:	Beispiel (==	15	16	17		18	9-	<u>.</u>		20	21	22	23	24

55 Ansprüche

Stabilisatorgemische zur Stabilisierung von Kunststoffen bestehend aus a) einem Gewichtsteil Chromanderivat (I) der allgemeinen Formel

I,

oder $-CH_2-CH_2-O-C-Z$, worin $Z = C_7-$ bis $C_{3\,0}-$ Alkyl,

-CH2CH2-S-[C1- bis C30-Alkyl] oder

15

20

25

5

10

und

b) 5 bis 14 Gewichtsteilen eines organischen Phosphits der allgemeinen Formel (II)

R¹0-P II OR³

mit R¹, R², R³ = gleiche oder verschiedene Alkyl-und/oder Arylgruppen oder eines organischen Phosphonits der Formel (III)

40

35

worin $+ = C(CH_3)_3$.

- 2. Stabilisatorgemisch gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Mischungsverhältnis der Komponenten (a):(b) = 1:6 bis 1:10.
- 3. Kunststoffe enthaltend 0,005 bis 5,0 Gewichtsprozent, bezogen auf das zu stabilisierende Material, eines Stabilisatorgemischs gemäß Anspruch 1 oder 2.

50

11 Veröffentlichungsnummer:

0 263 524 Δ3

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21) Anmeldenummer: 87114743.5

(1) Int. Cl.4: C08K 5/00 , //(C08K5/00,5:15, 5:52,5:53)

2 Anmeldetag: 09.10.87

@ Priorität: 10.10.86 DE 3634531

Veröffentlichungstag der Anmeldung:13.04.88 Patentblatt 88/15

Benannte Vertragsstaaten:

AT BE CH DE ES FR GB IT LI NL SE

Weröffentlichungstag des später veröffentlichten Recherchenberichts: 31.01.90 Patentblatt 90/05

71) Anmelder: BASF Aktiengesellschaft Carl-Bosch-Strasse 38 D-6700 Ludwigshafen(DE) Erfinder: Bock, Gustav, Dr.

Waldstrasse 16

D-6730 Neustadt(DE)

Erfinder: Trauth, Hubert

Milanstrasse 5

D-6724 Dudenhofen(DE)

Erfinder: Weber, Wilhelm, Dr.

Mandelbergstrasse 40

D-6730 Neustadt(DE)

Erfinder: Lechtken, Peter, Dr. Ludwigshafener Strasse 6 b

D-6710 Frankenthal(DE)

Stabilisatorgemische für Kunststoffe.

© Die Erfindung betrifft Stabilisatorgemische zur Sgabilisierung von Kunststoffen bestehend aus einem Gewichtsteil Chromanderivat (I) der allgemeinen Formel

I.

wobei R =
$$-(CH_2)_3-CH-(CH_2)_3-CH-(CH_2)_3-CH-(CH_3)_1$$

CH₃ CH₃ CH₃

$$-CH2CH2-S-[C1-bis C30-Alkyl] oder$$

und

5 bis 14 Gewichtsteilen eines organischen Phosphits der allgemeinen Formel (II)

Xerox Copy Centre

mit R^1 , R^2 , R^3 = gleiche oder verschiedene Alkyl- und/oder Arylgruppen oder eines organischen Phosphonits der Formel (III)

worin $+ = C(CH_3)_3$,

wobei ein Mischungsverhältnis (a): (b) = 1:6 bis 1:10 bevorzugt ist.



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

.EP 87 11 4743

	EINSCHLÄGIG	GE DOKUMENTE]	
Kategorie	Kennzeichnung des Dokum der maßgebli	nents mit Angabe, soweit erforderlich ichen Teile	, Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATI ANMELDUNG	ON DER (Int. Cl.4)
A,D	CHEMICAL ABSTRACTS 29. Oktober 1979, 3 Zusammenfassung Nr Ohio, US; & JP-A-79 PETROCHEMICAL INDUS 01-05-1979	Seite 30, . 141658m, Columbus, 9 55 043 (MITSUI	1-3	C 08 K (C 08 K C 08 K C 08 K C 08 K	5/00 // 5/00 5:15 5:52 5:53)
				RECHERCHI SACHGEBIET	ERTE
				C 08 K	
		·			
Der vo	rliegende Recherchenbericht wur	de für alle Patentansprüche erstellt			
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche		Prüfer	
DE	N HAAG	27-10-1989	HOEF	MANN K.W.	

KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE

X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur

- T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D: in der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument

- & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument

EPO FORM 1503 03.82 (P0403)

THIS PAGE BLANK (USPTO)